

**METHOD FOR MANUFACTURING SOLAR BATTERY MODULE**

**Patent number:** JP2002009309  
**Publication date:** 2002-01-11  
**Inventor:** KITAGAWA MASAKI  
**Applicant:** MITSUBISHI CHEM CORP  
**Classification:**  
- **international:** **H01L31/04; H01L31/04;** (IPC1-7): H01L31/04  
- **european:**  
**Application number:** JP20000190559 20000626  
**Priority number(s):** JP20000190559 20000626

**Report a data error here**

**Abstract of JP2002009309**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a method for manufacturing a solar battery module that has improved adhesion strength with a front cover or a back one. **SOLUTION:** In this method for manufacturing a solar battery module having a basic lamination structure of front cover/solar battery element/back cover, an ethylene unsaturated silane compound modification olefin resin sheet that is an olefin resin modified by an ethylene unsaturated silane compound expressed by a following expression (I)  $R_1SiR_2nY_3-n$ , has a radical generator content of 0.001 wt. % or less, and a gel fraction of 30% or less is included at least between the front cover and the solar battery element for fusion and lamination. In the expression (I),  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $Y$ , and  $(n)$  indicate an ethylene unsaturated hydrocarbon group or a hydrocarbon oxy group, a hydrocarbon group, an organic group that can be subjected to hydrolysis, and an integer of 0-2, respectively.

---

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-9309

(P2002-9309A)

(43)公開日 平成14年1月11日(2002.1.11)

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

タームコード(参考)

H 0 1 L 31/04

H 0 1 L 31/04

F 5 F 0 5 1

審査請求 未請求 請求項の数4 O L (全 7 頁)

(21)出願番号 特願2000-190559(P2000-190559)

(22)出願日 平成12年6月26日(2000.6.26)

(71)出願人 000003968

三菱化学株式会社

東京都千代田区丸の内二丁目5番2号

(72)発明者 北川 雅基

三重県四日市市東邦町1番地 三菱化学株式会社四日市事業所内

(74)代理人 100103997

弁理士 長谷川 暁司

Fターム(参考) 5F051 AA05 BA18 GA03 HA19 JA02  
JA03 JA05

(54)【発明の名称】 太陽電池モジュールの製造方法

(57)【要約】

【目的】 フロントカバー或いはバックカバーとの接着強度に優れる太陽電池モジュールの製造方法を提供する。

【構成】 フロントカバー／太陽電池素子／バックカバーの基本積層構造の太陽電池モジュールを製造するにおいて、少なくともフロントカバーと太陽電池素子との間に、下記一般式(Ⅰ)で表されるエチレン性不飽和シラン化合物により変性されたオレフィン系樹脂であって、ラジカル発生剤の含有量が0.001重量%以下であり、且つ、ゲル分率が30%以下のエチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂シートを介在させて融着積層する太陽電池モジュールの製造方法。

【化1】

$R^1 SiR^2_n Y_{3-n}$  (Ⅰ)

〔式(Ⅰ)中、 $R^1$  はエチレン性不飽和ヒドロカーボン基又はヒドロカーボンオキシ基、 $R^2$  はヒドロカーボン基、 $Y$  は加水分解可能な有機基を示し、 $n$  は0～2の整数である。〕

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 フロントカバー／太陽電池素子／バックカバーの基本積層構造の太陽電池モジュールを製造するにおいて、少なくともフロントカバーと太陽電池素子との間に、下記一般式(Ⅰ)で表されるエチレン性不飽和シラン化合物により変性されたオレフィン系樹脂であって、ラジカル発生剤の含有量が0.001重量%以下であり、且つ、ゲル分率が30%以下のエチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂シートを介在させて融着積層することを特徴とする太陽電池モジュールの製造方法。

## 【化1】



〔式(Ⅰ)中、 $R^1$  はエチレン性不飽和ハイドロカーボン基又はハイドロカーボンオキシ基、 $R^2$  はハイドロカーボン基、 $Y$  は加水分解可能な有機基を示し、 $n$  は0～2の整数である。〕

【請求項2】 太陽電池素子とバックカバーとの間にも、前記エチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂シートを介在させて融着積層する請求項1に記載の太陽電池モジュールの製造方法。

【請求項3】 エチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂におけるエチレン性不飽和シラン化合物単位の含有量が0.1～10重量%である請求項1又は2に記載の太陽電池モジュールの製造方法。

【請求項4】 フロントカバーがガラスであり、バックカバーが弗素系樹脂である請求項1乃至3のいずれかに記載の太陽電池モジュールの製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、アモルファスシリコン等の半導体を用いた太陽電池モジュールの製造方法に関し、更に詳しくは、フロントカバー或いはバックカバーとの接着強度に優れる太陽電池モジュールの製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来より、アモルファスシリコン等の半導体を用いた太陽電池モジュールは、その太陽電池素子の受光面側に透明性樹脂等による封止材シートを介在させ、その受光面側に保護を目的としたガラス等の透明基板からなるフロントカバーを、裏面側に同上の封止材シートを介在せずして或いは介在させて、防湿を目的とした樹脂や金属或いはガラス等からなるバックカバーをそれぞれ設けて、融着積層することにより製造されている。

【0003】そして、その封止材シートとしては、透明性や防湿性に優れ、又、積層時の融着加工性に優れる等の面からエチレン酢酸ビニル共重合体樹脂が主に用いられているが、フロントカバー或いはバックカバーとの接着強度が必ずしも十分とは言えず、屋外での長期使用

時にその弱点が露れるという問題を内在するものであった。

【0004】これに対して、融着積層時に封止材樹脂に架橋反応を生起させて材料自体の強度、及び耐熱性や耐久性等を付与すべく、例えば、特公昭62-14111号公報には、エチレン酢酸ビニル共重合体樹脂にシランカップリング剤及び有機過酸化物を添加した樹脂シートを用いる方法が、又、特公昭62-9232号公報には、有機シラン化合物でグラフト変性したエチレン酢酸ビニル共重合体樹脂に有機過酸化物を添加した樹脂シートを用いる方法が、又、特公平6-104729号公報には、エチレンエチレン性不飽和カルボン酸エステルエチレン性不飽和シラン化合物三元共重合体樹脂に有機過酸化物を添加した樹脂シートを用いる方法が、それぞれ提案されているが、いずれも有機過酸化物を含有させていることから、それらのシート成形時において有機過酸化物が分解して樹脂の架橋反応を惹起し、シート成形が困難となったり、積層時の融着加工性が低下したり、或いは、積層時に有機過酸化物由来の分解生成物が接着界面に残存して接着阻害を引き起こす等の欠点を有し、依然として更なる改良が求められているのが現状である。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、前述の従来技術に鑑みてなされたもので、従って、本発明は、フロントカバー或いはバックカバーとの接着強度に優れる太陽電池モジュールの製造方法を提供することを目的とする。

## 【0006】

【課題を解決するための手段】本発明は、フロントカバー／太陽電池素子／バックカバーの基本積層構造の太陽電池モジュールを製造するにおいて、少なくともフロントカバーと太陽電池素子との間に、下記一般式(Ⅰ)で表されるエチレン性不飽和シラン化合物により変性されたオレフィン系樹脂であって、ラジカル発生剤の含有量が0.001重量%以下であり、且つ、ゲル分率が30%以下のエチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂シートを介在させて融着積層する太陽電池モジュールの製造方法、を要旨とする。

## 【0007】

## 【化2】



【0008】〔式(Ⅰ)中、 $R^1$  はエチレン性不飽和ハイドロカーボン基又はハイドロカーボンオキシ基、 $R^2$  はハイドロカーボン基、 $Y$  は加水分解可能な有機基を示し、 $n$  は0～2の整数である。〕

## 【0009】

【発明の実施の形態】本発明の、フロントカバー／太陽電池素子／バックカバーの基本積層構造の太陽電池モジュールの製造方法において、フロントカバーとしてはガ

ラス等、又、太陽電池素子としてはシリコン半導体等、又、バックカバーとしては弗素系重合体等の樹脂、アルミニウム等の金属を樹脂でサンドイッチした積層物、或いはガラス等、いずれも従来より公知の材料がそれぞれ用いられるが、フロントカバーとしてはガラスが、又、バックカバーとしては弗素系樹脂が好適である。

【0010】尚、本発明において、バックカバーとしての弗素系重合体としては、ポリ弗化ビニル樹脂、ポリ弗化ビニリデン樹脂、エチレン-テトラフルオロエチレン共重合体樹脂等が好ましい。

【0011】そして、本発明の太陽電池モジュールの製造方法においては、少なくとも前記フロントカバーと前記太陽電池素子との間に、前記一般式(Ⅰ)で表されるエチレン性不飽和シラン化合物により変性されたオレフィン系樹脂であって、ラジカル発生剤の含有量が0.001重量%以下であり、且つ、ゲル分率が30%以下のエチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂シートを介在させて融着積層することが必須である。

【0012】ここで、そのエチレン性不飽和シラン化合物としての前記一般式(Ⅰ)における $R^1$ としては、例えば、プロペニル基、ブテニル基、シクロヘキセニル基、 $\gamma$ -(メタ)アクリロイルオキシプロピル基等が、 $R^2$ としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、デシル基、フェニル基等が、Yとしては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、ホルミルオキシ基、アセトキシ基、プロピオニルオキシ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基等が、それぞれ挙げられ、このようなエチレン性不飽和シラン化合物の具体例としては、例えば、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、 $\gamma$ -メタクリロイルオキシプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。

【0013】本発明におけるエチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂としては、オレフィン系樹脂を、該樹脂100重量部に対して0.01~5重量部程度の有機過酸化物等のラジカル発生剤の存在下に前記エチレン性不飽和シラン化合物0.1~5重量部程度と共に、例えば押出機等を用いてラジカル発生剤の分解温度以上の温度で熔融混練してグラフト反応工程に付して得られた変性オレフィン系樹脂、又は、例えばエチレン90~99.99重量%と前記エチレン性不飽和シラン化合物10~0.01重量%とを、場合により更に、酢酸ビニル、(メタ)アクリル酸、(メタ)アクリル酸エステル等と共に、通常の高圧ラジカル重合条件下にラジカル共重合させて得られた変性エチレン系樹脂等、従来よりエチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂として公知の材料を用いることができる。

【0014】尚、前者のエチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂のオレフィン系樹脂としては、エチレン、プロピレン、1-ブテン等の炭素数2~8程度の $\alpha$ -オレフィンの単独重合体、それらの $\alpha$ -オレフィ

ンとエチレン、プロピレン、1-ブテン、3-メチル-1-ブテン、1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘキセン、1-オクテン、1-デセン等の炭素数2~20程度の他の $\alpha$ -オレフィンや、酢酸ビニル、(メタ)アクリル酸、(メタ)アクリル酸エステル等との共重合体等が挙げられ、具体的には、例えば、低・中・高密度ポリエチレン等(分岐状又は直鎖状)のエチレン単独重合体、エチレン-プロピレン共重合体、エチレン-1-ブテン共重合体、エチレン-4-メチル-1-ペンテン共重合体、エチレン-1-ヘキセン共重合体、エチレン-1-オクテン共重合体、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-(メタ)アクリル酸共重合体、エチレン-(メタ)アクリル酸エチル共重合体等のエチレン系樹脂、プロピレン単独重合体、プロピレン-エチレン共重合体、プロピレン-エチレン-1-ブテン共重合体等のプロピレン系樹脂、及び、1-ブテン単独重合体、1-ブテン-エチレン共重合体、1-ブテン-プロピレン共重合体等の1-ブテン系樹脂等が挙げられる。中で、本発明においては、エチレン系樹脂が好ましい。

【0015】又、前者のエチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂のグラフト反応工程において用いられるラジカル発生剤としては、例えば、ジイソプロピルベンゼンヒドロパーオキシド、2,5-ジメチル-2,5-ジ(ヒドロパーオキシ)ヘキサン等のヒドロパーオキシド類、ジ-*t*-ブチルパーオキシド、*t*-ブチルキミルパーオキシド、ジキミルパーオキシド、2,5-ジメチル-2,5-ジ(*t*-ブチルパーオキシ)ヘキサン、2,5-ジメチル-2,5-ジ(*t*-ブチルパーオキシ)ヘキシン-3等のジアルキルパーオキシド類、ビス-3,5,5-トリメチルヘキサノイルパーオキシド、オクタノイルパーオキシド、ベンゾイルパーオキシド、*o*-メチルベンゾイルパーオキシド、2,4-ジクロロベンゾイルパーオキシド等のジアシルパーオキシド類、*t*-ブチルパーオキシアセテート、*t*-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、*t*-ブチルパーオキシピバレート、*t*-ブチルパーオキシオクトエート、*t*-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート、*t*-ブチルパーオキシベンゾエート、ジ-*t*-ブチルジパーオキシフタレート、2,5-ジメチル-2,5-ジ(ベンゾイルパーオキシ)ヘキサン、2,5-ジメチル-2,5-ジ(ベンゾイルパーオキシ)ヘキシン-3等のパーオキシエステル類、メチルエチルケトンパーオキシド、シクロヘキサノンパーオキシド等のケトンパーオキシド類等の有機過酸化物、アゾビスイソブチロニトリル、アゾビス(2,4-ジメチルバレロニトリル)等のアゾ化合物等が挙げられる。

【0016】本発明の太陽電池モジュールの製造方法において、少なくとも前記フロントカバーと前記太陽電池素子との間に介在させる封止材シートとしての前記エチ

レン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂としては、エチレン性不飽和シラン化合物単位の含有量が0.1～10重量%であるものが好ましく、0.5～5重量%であるものが特に好ましい。エチレン性不飽和シラン化合物単位の含有量が前記範囲未満では、フロントカバー或いはバックカバーとの接着強度の改良が認められ難い傾向となり、一方、前記範囲超過では、シート成形時に架橋反応が生じ易い傾向となる。

【0017】又、前記エチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂は、シート成形性、接着性等の面から、190℃でのメルトフローレートが0.01～200g/10分であるものが好ましく、0.1～100g/10分であるものが特に好ましい。又、融着加工性等の面から、融点が120℃以下であるものが好ましい。

【0018】そして、本発明において、少なくとも前記フロントカバーと前記太陽電池素子との間に介在させて融着積層するにおける封止材シートとしての前記エチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂としては、ラジカル発生剤の含有量が0.001重量%以下であり、且つ、ゲル分率が30%以下であることが必須である。ラジカル発生剤の含有量が前記範囲超過では、積層時にラジカル発生剤由来の分解生成物が接着界面に残存して接着阻害を引き起こし、又、ゲル分率が前記範囲超過では、積層時の融着加工性が低下し、いずれも、フロントカバー或いはバックカバーとの接着強度の改良が認められないこととなる。

【0019】尚、ここで、融着積層するにおける封止材シートとしての前記エチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂としては、前記変性オレフィン系樹脂の未変性オレフィン系樹脂による希釈物であってもよく、その場合、前記エチレン性不飽和シラン化合物単位含有量、前記メルトフローレート、前記融点、及び、前記ラジカル発生剤及び遊離基含有量、前記ゲル分率は、いずれも希釈物としてのものとする。

【0020】本発明における前記エチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂は、通常、シラノール縮合触媒の存在下に水分と接触させる、所謂、水架橋法により樹脂内に架橋構造を形成させることができる樹脂であり、本発明における封止材シートとしても、積層時においては、融着加工性等の面から過度の架橋形成は避けるべきでありゲル分率として前述の如く30%以下とする必要があるが、積層後においては、架橋構造を形成しているのが好ましく、そのゲル分率として60%以上であるのが好ましい。

【0021】その水架橋法による架橋処理は、例えば、ジブチル錫ジアセテート、ジブチル錫ジラウレート、ジブチル錫ジオクテート、ジオクチル錫ジラウレート等の、シリコンのシラノール間の脱水縮合反応を促進するシラノール縮合触媒を予め前記変性オレフィン系樹脂に、該樹脂100重量部に対して0.001～10重量

部程度配合する等して用い、或いは用いずに、常温～200℃程度、通常は常温～100℃程度の液状又は蒸気状の水に10秒～1週間程度、通常は1分～1日程度にわたって接触させることによりなされるが、本発明における積層後の封止材シートにおけるゲル分率は、特にこのような水架橋処理の工程を独自に設けずとも、後述する積層工程等により達成することができる。

【0022】尚、本発明における前記エチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂には、本発明の効果を損なわない範囲で、前記エチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂以外の熱可塑性樹脂やゴム、及び、酸化防止剤、光安定剤、紫外線吸収剤、造核剤、中和剤、帯電防止剤、滑剤、ブロッキング防止剤、分散剤、流動性改良剤、可塑剤、離型剤、難燃剤、着色剤、充填材等が添加されてもよい。

【0023】本発明における前記エチレン性不飽和シラン化合物変性オレフィン系樹脂シートは、通常の熱可塑性樹脂のシート成形法に従い、例えば、Tダイを備えた押出機により、100～250℃程度の温度で熔融押出し、冷却固化させることにより、0.1～1.0mm程度の厚みで成形される。

【0024】本発明の太陽電池モジュールの製造は、少なくとも前記フロントカバーと前記太陽電池素子との間に前記変性オレフィン系樹脂シートを介在させて、フロントカバー／変性オレフィン系樹脂シート／太陽電池素子／バックカバーをこの順序で重ね合わせ、好ましくは、前記太陽電池素子と前記バックカバーとの間にも前記変性オレフィン系樹脂シートを介在させて、フロントカバー／変性オレフィン系樹脂シート／太陽電池素子／変性オレフィン系樹脂シート／バックカバーをこの順序で重ね合わせ、或いは、フロントカバー／変性オレフィン系樹脂シート／太陽電池素子／変性オレフィン系樹脂シート／バックカバー／変性オレフィン系樹脂シート／バックカバーをこの順序で重ね合わせ、変性オレフィン系樹脂の融点より高い温度、好ましくは融点より10℃以上高い温度で、通常1～60分程度、好ましくは5～30分程度の時間、通常20～200kPa程度、好ましくは30～150kPa程度の加圧下で、融着積層することによりなされる。

【0025】

【実施例】以下、本発明を実施例により更に具体的に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の実施例に限定されるものではない。

【0026】実施例1

密度0.910g/cm<sup>3</sup>、190℃でのメルトフローレート3.5g/10分の直鎖状エチレン-1-オクテン共重合体100重量部、ビニルトリメトキシシラン2重量部、及びジクミルパーオキサイド0.06重量部を、2分間ドライブレンドした後、スクリー径40mm、L/D25の一軸押出機に供給し、220℃で熔融混練してグラフト反応工程に付した後、ストランド状に

熔融押出し、ペレット化することにより、ビニルトリメトキシシラン変性直鎖状エチレン-1-オクテン共重合体(次表中、「シラングラフトLLDPE」と表示。)のペレットを得た。得られた変性物は、ビニルトリメトキシシラン単位の含有量1.5重量%、190℃でのメルトフローレート2g/10分、融点112℃であり、又、未反応のジクミルパーオキサイドをメタノールで抽出し、ガスクロマトグラフを用いて分析した含有量は、0.001重量%以下であった。

【0027】このビニルトリメトキシシラン変性直鎖状エチレン-1-オクテン共重合体を、幅1000mmのTダイを備えた、スクリュ径65mm、L/D26の押出機より、ダイ温度150℃でシート状に熔融押出し、冷却することにより、厚み0.6mmの変性オレフィン系樹脂シートを成形した。このシート成形を5時間にわたって行ったが、その間の成形性は安定していた。又、以下に示す方法でゲル分率を測定し、結果を表1に示した。

#### ゲル分率

キシレン沸点にて10時間ソックスレー抽出した後の不溶分の重量%を測定した。

【0028】得られたシートを用いて、青板ガラス/変性オレフィン系樹脂シート/太陽電池素子/変性オレフィン系樹脂シート/ポリ弗化ビニルシート(米国デュポン社製「テドラー」)の順に重ね合わせ、58kPaの圧力下、表1に示す温度及び時間の条件で、融着積層した後、放冷することにより、太陽電池モジュールを製造し、得られた太陽電池モジュールについて、青板ガラスと変性オレフィン系樹脂シート間、及び、ポリ弗化ビニルシート(次表中、「PVF」と表示。)と変性オレフィン系樹脂シート間の各々について、接着状態を目視観察したところ、いずれも均一に接着していることが確認された。更に、以下に示す方法で剥離強度を測定し、又、剥離後の変性オレフィン系樹脂シートのゲル分率を前記と同じ方法で測定し、それぞれの結果を表1に示した。

#### 剥離強度

10mm幅に切り取った試料を用い、引張速度100mm/分で90度剥離による剥離強度を測定した。

#### 【0029】実施例2

酢酸ビニル単位含有量20重量%、190℃でのメルトフローレート15g/10分のエチレン-酢酸ビニル共重合体97重量部、酢酸ビニル単位含有量15重量%、190℃でのメルトフローレート2g/10分のエチレン-酢酸ビニル共重合体3重量部、ビニルトリメトキシシラン2重量部、及び $\alpha$ -ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート0.3重量部を、2分間ドライブレンドした後、スクリュ径40mm、L/D25の一軸押出機に供給し、190℃で熔融混練してグラフト反応工程に付した後、ストランド状に熔融押出し、ペレット化

することにより、ビニルトリメトキシシラン変性エチレン-酢酸ビニル共重合体(次表中、「シラングラフトEVA」と表示。)のペレットを得た。得られた変性物は、ビニルトリメトキシシラン単位の含有量1.3重量%、190℃でのメルトフローレート9g/10分、融点89℃であり、又、未反応の $\alpha$ -ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエートをメタノールで抽出し、ガスクロマトグラフを用いて分析した含有量は、0.001重量%以下であった。

【0030】得られたビニルトリメトキシシラン変性エチレン-酢酸ビニル共重合体を用いた外は、実施例1と同様にして、変性オレフィン系樹脂シートを成形したところ、成形性は安定していた。又、シートにおけるゲル分率を測定し、結果を表1に示した。更に、融着積層することにより太陽電池モジュールを製造し、青板ガラスと変性オレフィン系樹脂シート間、及び、ポリ弗化ビニルシートと変性オレフィン系樹脂シート間の各々について、接着状態を目視観察したところ、いずれも均一に接着していることが確認された。又、剥離強度を測定し、更に、剥離後の変性オレフィン系樹脂シートのゲル分率を測定し、それぞれの結果を表1に示した。

#### 【0031】実施例3

アクリル酸エチル単位含有量19重量%、190℃でのメルトフローレート5g/10分のエチレン-アクリル酸エチル共重合体100重量部、ビニルトリメトキシシラン2.5重量部、及び $\alpha$ -ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート0.3重量部を、2分間ドライブレンドした後、スクリュ径40mm、L/D25の一軸押出機に供給し、190℃で熔融混練してグラフト反応工程に付した後、ストランド状に熔融押出し、ペレット化することにより、ビニルトリメトキシシラン変性エチレン-アクリル酸エチル共重合体(次表中、「シラングラフトEEA」と表示。)のペレットを得た。得られた変性物は、ビニルトリメトキシシラン単位の含有量1.4重量%、190℃でのメルトフローレート4.5g/10分、融点90℃であり、又、未反応の $\alpha$ -ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエートをメタノールで抽出し、ガスクロマトグラフを用いて分析した含有量は、0.001重量%以下であった。

【0032】得られたビニルトリメトキシシラン変性エチレン-アクリル酸エチル共重合体を用いた外は、実施例1と同様にして、変性オレフィン系樹脂シートを成形したところ、成形性は安定していた。又、シートにおけるゲル分率を測定し、結果を表1に示した。更に、融着積層することにより太陽電池モジュールを製造し、青板ガラスと変性オレフィン系樹脂シート間、及び、ポリ弗化ビニルシートと変性オレフィン系樹脂シート間の各々について、接着状態を目視観察したところ、いずれも均一に接着していることが確認された。又、剥離強度を測定し、更に、剥離後の変性オレフィン系樹脂シートのゲ

ル分率を測定し、それぞれの結果を表1に示した。

#### 【0033】実施例4

内容積1.5リットルの攪拌機付き反応器にエチレン、 $\gamma$ -メタクリロイルオキシプロピルトリメトキシシラン、及びアクリル酸メチルの混合物、並びに $\alpha$ -ブチルパーオキシネオデカノエートを連続的に供給し、重合圧力20MPa、重合温度190℃で共重合させることにより、エチレン- $\gamma$ -メタクリロイルオキシプロピルトリメトキシシラン-アクリル酸メチル三元共重合体(次表中、「シラン共重合LDPE」と表示。)のペレットを得た。得られた変性物は、 $\gamma$ -メタクリロイルオキシプロピルトリメトキシシラン単位の含有量1.1重量%、アクリル酸メチル単位の含有量25重量%、190℃でのメルトフローレート10g/10分、融点81℃であり、又、未反応の $\alpha$ -ブチルパーオキシネオデカノエートをメタノールで抽出し、ガスクロマトグラフを用いて分析した含有量は、0.001重量%以下であった。

【0034】得られたエチレン- $\gamma$ -メタクリロイルオキシプロピルトリメトキシシラン-アクリル酸メチル共重合体を用いた外は、実施例1と同様にして、変性オレフィン系樹脂シートを成形したところ、成形性は安定していた。又、シートにおけるゲル分率を測定し、結果を表1に示した。更に、融着積層することにより太陽電池モジュールを製造し、青板ガラスと変性オレフィン系樹脂シート間、及び、ポリ弗化ビニルシートと変性オレフィン系樹脂シート間の各々について、接着状態を目視観察したところ、いずれも均一に接着していることが確認された。又、剥離強度を測定し、更に、剥離後の変性オレフィン系樹脂シートのゲル分率を測定し、それぞれの結果を表1に示した。

#### 【0035】比較例1

実施例2で得られたビニルトリメトキシシラン変性エチレン-酢酸ビニル共重合体100重量部にジクミルパーオキサイド2重量部を添加して用いた外は、実施例1と同様にして、変性オレフィン系樹脂シートを成形したと

ころ、成形開始後15分で耳部に架橋反応が生じ、シート成形が困難となった。又、成形が良好のときのシートについてゲル分率を測定し、結果を表1に示した。更に、成形が良好のときのシートを用いて融着積層することにより太陽電池モジュールを製造し、青板ガラスと変性オレフィン系樹脂シート間、及び、ポリ弗化ビニルシートと変性オレフィン系樹脂シート間の各々について、接着状態を目視観察したところ、いずれもラジカル発生剤の分解生成物によるとみられる気泡が多く認められ、接着していない部分が多数存在していた。又、剥離強度を測定し、更に、剥離後の変性オレフィン系樹脂シートのゲル分率を測定し、それぞれの結果を表1に示した。

#### 【0036】比較例2

アクリル酸エチル単位含有量19重量%、190℃でのメルトフローレート5g/10分、融点90℃のエチレン-アクリル酸エチル共重合体100重量部に、 $\gamma$ -メタクリロイルオキシプロピルトリメトキシシラン1.5重量部、及びジ- $\alpha$ -ブチルパーオキサイド1重量部を添加して用いた外は、実施例1と同様にして、変性オレフィン系樹脂(次表中、「シラングラフトEEA」と表示。)シートを成形したところ、成形開始後20分で耳部に架橋反応が生じ、シート成形が困難となった。又、成形が良好のときのシートについてゲル分率を測定し、結果を表1に示した。更に、成形が良好のときのシートを用いて融着積層することにより太陽電池モジュールを製造し、青板ガラスと変性オレフィン系樹脂シート間、及び、ポリ弗化ビニルシートと変性オレフィン系樹脂シート間の各々について、接着状態を目視観察したところ、いずれもラジカル発生剤の分解生成物によるとみられる気泡が多く認められ、接着していない部分が多数存在していた。又、剥離強度を測定し、更に、剥離後の変性オレフィン系樹脂シートのゲル分率を測定し、それぞれの結果を表1に示した。

#### 【0037】

#### 【表1】

表 1

	変性オレフィン系樹脂シート			積層条件		モジュール製造後の樹脂シート		
	樹脂種類	ラジカル発生 剤含有量 (重量%)	ゲル分率 (%)	温度 (℃)	時間 (分)	ゲル分率 (%)	接着強度 (N/10mm)	
							対ガラス	対PVF
実施例 1	シラングラフト LLDPE	≤0.001	2	130 150	30 15	73 80	21 35	15 30
実施例 2	シラングラフト EVA	≤0.001	5	130 150	30 15	71 74	28 43	24 39
実施例 3	シラングラフト BBA	≤0.001	3	130 150	30 15	75 76	25 41	22 39
実施例 4	シラン 共重合 LDPE	≤0.001	5	130 150	30 15	82 84	33 52	26 41
比較例 1	シラングラフト EVA	1.65	14	130 150	30 15	47 82	10 48	4 45
比較例 2	シラングラフト BBA	0.92	11	130 150	30 15	53 85	12 50	5 46

【0038】

【発明の効果】本発明によれば、フロントカバー或いは

バックカバーとの接着強度に優れる太陽電池モジュールの製造方法を提供することができる。